



TITLE:

7 固体 $^3\text{He}$ の反強磁性のUudd状態の磁性理論(凝縮系種々相の最近の展望,科研費研究会報告)

AUTHOR(S):

宗田, 敏雄

---

CITATION:

宗田, 敏雄. 7 固体 $^3\text{He}$ の反強磁性のUudd状態の磁性理論(凝縮系種々相の最近の展望,科研費研究会報告). 物性研究 1983, 40(3): 38-43

ISSUE DATE:

1983-06-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/91012>

RIGHT:

# 固体 $^3\text{He}$ の反強磁性の U U D D 状態の磁性理論

筑波大学物理 宗田 敏雄

## § 1 序

固体  $^3\text{He}$  の融解点近傍の反強磁性相が1次転移で  $T_N = 1.03 \text{ mK}$  以下に存在することが Idalperin<sup>1)</sup> の圧力の温度変化からのエントロピー測定より解り, Goodkind<sup>2)</sup> や Adams<sup>3)</sup> の帯磁率の測定から2スピンの交換相互作用の Heisenberg 理論ではこの反強磁性が説明出来ないことが明らかになった。また Osheroff<sup>4)</sup> の NMR の実験により, この相が U U D D (上上下下) のスピン構造を持つことが明らかになった。

3個と4個のスピン交換相互作用を取り入れた分子場理論が Roger<sup>5)</sup> によって展開され, 色々な物理量, 例えば垂直方向帯磁率  $\chi_\perp$ , NMR の振動数, スピン波速度, U U D D 相に隣接する高磁場相 H F P の臨界磁場  $H_c(0)$  と  $k$  での飽和磁化  $M$  が, 70 ~ 80 % の精度で説明された。

これをもう少し進め, スピン相関を取り入れオーダーパラメーターの有限温度での振動を記述出来る様に, スピン波理論を含む decoupling の方法を用いたグリーン関数の理論を展開して, 分子場理論より物理量の実験とのより良一致をめざす理論について話をやる。<sup>6)</sup>

## § 2 グリーン関数の運動方程式と Decoupling

ハミルトニアンは次の2体と4体のスピン交換相互作用で与えられる。

$$H = -2 \sum_{\substack{f=g \\ f \neq g}} \sum_{ij} J_{ij} (S_i \cdot S_j) - 4 \sum_{\alpha=P} \sum_{ijke} K_{\alpha} [(S_i \cdot S_j)(S_k \cdot S_e) + (S_i \cdot S_e)(S_j \cdot S_k) - (S_i \cdot S_k)(S_j \cdot S_e)]$$

(P: planar, F: folded). (1)

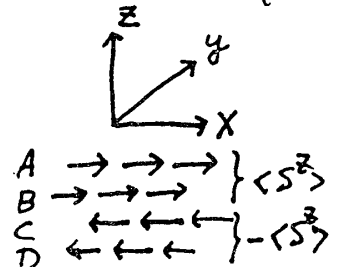
今 A, B, C, D を U U D D のスピンの副格子とすると,  $X_i, Y_j \in A, B, C, D$  で  $S_{X_i}^+$  と  $S_{Y_j}^-$  の2時間遅延グリーン関数は下式で与えられる。

$$G_{X_i Y_j} = \langle \langle S_{X_i}^+(t); S_{Y_j}^-(0) \rangle \rangle. \quad (2)$$

オーダーパラメーター  $\langle S^z \rangle$  を次の様に導入する。  $\langle S^z \rangle$  の添字

$$\langle S_{A_i}^z \rangle = \langle S_{B_i}^z \rangle = -\langle S_{C_i}^z \rangle = -\langle S_{D_i}^z \rangle = \langle S^z \rangle.$$

の  $z$  と座標軸との関係は右図で与えられる (磁場は  $z$  方向にかける)。



グリーン関数の運動方程式は, 時間  $t$  でのある格子点でのスピンの従う Heisenberg 方程式と時間  $0$  での他の格子点にあるス

オ 1 図

ピンの遅延積を作ることにより得られる。この運動方程式に出て来る2個のスピン積と, 新たに出て来る4個のスピン積を次の様に decouple する。例えば,

$$\langle \langle S_{A_m}^+ S_{B_j}^z - S_{A_m}^z S_{B_j}^+; S_{A_0} \rangle \rangle \simeq \langle S^z \rangle (\langle \langle S_{A_m}^+; S_{A_0} \rangle \rangle - \langle \langle S_{B_j}^+; S_{A_0} \rangle \rangle). \quad (\text{Tyablikov法})$$

$$\begin{aligned} \langle [S_{Am}^+, (S_{Ai} S_{Bj}) (S_{Ak} S_{Bl})] ; S_{A0} \rangle &= -\frac{1}{2} \langle \{ (S_{Bj}^2 S_{Ak}^2 S_{Bl}^2 + S_{Ai}^2 S_{Bj}^2 S_{Bl}^2) S_{Am}^+ + [S_{Bj}^2 (S_{Ai}^+ S_{Bl}^- + S_{Ak}^+ S_{Bl}^-) + (S_{Ai}^+ S_{Bj}^- + S_{Ak}^+ S_{Bl}^-) S_{Bl}^2] S_{Am}^+ - S_{Am}^2 [(S_{Ai}^2 S_{Bj}^2 S_{Bl}^2 + S_{Ak}^2 S_{Bj}^2 S_{Bl}^2) + S_{Bj}^2 (S_{Ai}^+ S_{Bl}^- + S_{Ak}^+ S_{Bl}^-) + (S_{Ai}^+ S_{Bj}^- + S_{Ak}^+ S_{Bl}^-) S_{Bl}^2] \} ; S_{A0} \rangle \\ &\simeq -\langle S^z \rangle \{ \langle S^z \rangle^2 + \langle S_A^+ S_B^- \rangle + \langle S_A^- S_B^+ \rangle \} \langle S_{Am}^+ ; S_{A0} \rangle - \frac{1}{2} \{ \langle S^z \rangle^2 + \langle S_A^+ S_B^- \rangle + \langle S_A^- S_B^+ \rangle \} \langle S_{Bj}^+ ; S_{A0} \rangle + \langle S_{Bl}^+ ; S_{A0} \rangle \}. \end{aligned}$$

この結果の運動方程式を時間と空間にフーリエ変換して次の行列式で書いて、

$$G_{BA}(\omega) = \sum_{R_i, R_j} \int dt e^{ik(R_i - R_j) + i\omega t} G_{B; A_j}(t)$$

$$\begin{pmatrix} -\omega + M & a & c & b^+ \\ a^+ & -\omega + M & b & c \\ c & b^+ & \omega + M & a \\ b & c & a^+ & \omega + M \end{pmatrix} \begin{pmatrix} G_{AA} \\ G_{BA} \\ G_{CA} \\ G_{DA} \end{pmatrix} = -2\langle S^z \rangle \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (3)$$

これから出る行列要素  $M, a, b, c$  は格子間隔  $d$  とあると次で与えられる。

$$M = 2\langle S^z \rangle \{ 2J_2 - 4J_3 - 4(3K_p + K_F) [4\langle S^z \rangle^2 + 2(\langle S_B^+ S_A^- \rangle - \langle S_D^+ S_A^- \rangle + \langle S_B^+ S_D^- \rangle_{2n})] - 2[J_2 + 2K_p(2\langle S^z \rangle^2 - \langle S_B^+ S_D^- \rangle_{2n})] (\cos dk_x + \cos dk_y) - [4J_3 + 2K_p(4\langle S^z \rangle^2 - \langle S_B^+ S_D^- \rangle_{3n})] \cos dk_x \cos dk_y \}. \quad (4)$$

$$a = 2\langle S^z \rangle [-J_1 + 2(3K_p + K_F)(2\langle S^z \rangle^2 - \langle S_D^+ S_A^- \rangle)] \cdot 4 \cos \frac{dk_x}{2} \cos \frac{dk_y}{2} e^{-\frac{idk_z}{2}}. \quad (5)$$

$$b = 2\langle S^z \rangle [-J_1 - 2(3K_p + K_F)(2\langle S^z \rangle^2 - \langle S_B^+ S_A^- \rangle)] \cdot 4 \cos \frac{dk_x}{2} \cos \frac{dk_y}{2} e^{-\frac{idk_z}{2}}. \quad (6)$$

$$c = 4\langle S^z \rangle \cos dk_z \{ -J_2 + 4(K_p + 2K_F)(\langle S^z \rangle^2 - \langle S_A^+ S_A^- \rangle_{3n}) + [-2J_3 + 4K_p(\langle S^z \rangle^2 - \langle S_A^+ S_A^- \rangle_{2n})] (\cos dk_x + \cos dk_y) \}. \quad (7)$$

スピンの交換相互作用を3体の  $J_t$  と4体の  $K_p$  と  $K_F$  で書く、 $nn, 2nn$  と  $3nn$  の結合定数  $J_f$  は、次式で与えられることを示すことが出来る(裸の  $J_f$  は無いとして)。

$$J_1 = 3(-2J_t + K_p + K_F), J_2 = -4J_t + K_p + 2K_F, J_3 = K_p/2.$$

今後は、 $\text{Cu}_2\text{O}$  の温度  $\theta = -2.6 \text{ mK}$  とスピン波速度  $8.4 \pm 0.4 \text{ cm/s}$  (実験値) を用いて  $J_t = -0.130 \text{ mK}$ ,  $K_p = -0.385 \text{ mK}$ ,  $K_F = 0$  の2パラメータの組を用いる。また(3)式の固有値はスピン波のエネルギー  $\Delta_{\pm}$  と与えられる。スピン波速度  $c$

$\omega^2 = \Delta_{\pm}^2$ ;  $C_{acoustic} = \Delta_-/k$ ,  $C_{optical} = \Delta_+/k$  ( $\Delta_{\pm} = \Delta_{\pm}(k=0)$ ) 2種類  $C_{acoustic}$  と  $C_{optical}$  を与えより求められる。また(3)式を解いてグリーン関数  $G_{AA}, G_{BA}, G_{CA}$  と  $G_{DA}$  が得られる。

$$G_{AA} = -2\langle S^z \rangle \frac{-\omega^2 - M\omega^2 + (M^2|a|^2 - |b|^2 - c^2)\omega + M(M^2|a|^2 - |b|^2 - c^2) + (a^+b^+ + ab)c}{(\omega^2 - \Delta_+^2)(\omega^2 - \Delta_-^2)}.$$

$$G_{BA} = \dots, G_{CA} = \dots, G_{DA} = \dots \quad (8)$$

§ 3  $\langle S^z(T) \rangle$  と垂直帯磁率  $\chi_L(T)$  と NMR の振動数  $\Omega(T)$  に対する方程式

相関関数  $\langle S_{xi}^+ S_{yj}^- \rangle$  がグリーン関数の虚部より次のスペクトル定理で与えられる。

$$\langle S_{xi}^+ S_{yj}^- \rangle = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \frac{i}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \frac{\langle S_{xi}^+ S_{yj}^- \rangle_{\omega+i\epsilon} - \langle S_{xi}^+ S_{yj}^- \rangle_{\omega-i\epsilon}}{e^{\beta\omega} - 1}. \quad (9)$$

特に  $x_i = y_j = A_i$  とし、恒等式  $\langle S_{Ai}^+ S_{Ai}^- \rangle = \frac{1}{2} + \langle S^z(T) \rangle$  を用いると、 $\langle S^z(T) \rangle$  の方程式

$$\frac{1}{2\langle S^z(T) \rangle} = \frac{4}{N} \sum_k \frac{1}{\Delta_+^2 - \Delta_-^2} \{ M(\Delta_+ \coth \frac{\beta\Delta_+}{2} - \Delta_- \coth \frac{\beta\Delta_-}{2}) - [M(M^2|a|^2 - |b|^2 - c^2) +$$

$$(a^+b^+ + ab)c \left[ \frac{\coth \frac{\beta \Delta_+}{2}}{\Delta_+} - \frac{\coth \frac{\beta \Delta_-}{2}}{\Delta_-} \right] \quad (10)$$

が得られます。これは  $\langle S^2(T) \rangle$  の self-consistent 方程式である。(N は  $^3\text{He}$  原子の総数)。

垂直磁率  $\chi_L(T)$  は  $S_{A_i}$  の線形応答 1 次の様にあめられる。

$$\chi_L(T) = \left(\frac{\gamma \hbar}{2}\right)^2 \int_0^\beta d\lambda \sum_j \langle S_{x_j}^+(0) S_{A_i}^-(i\lambda) \rangle = N \left(\frac{\gamma \hbar}{2}\right)^2 \lim_{k \rightarrow 0} \frac{4 \langle S^2 \rangle}{\Delta_+^2 \Delta_-^2} [M(M^2 - |a|^2 - |b|^2 - c^2) + (a^+b^+ + ab)(M+c) - M^2(a^+b - c) + c(c^2 - |a|^2 - |b|^2) + (a^+ - b)c^2 + (a^+ - b^2)(a - b^+) + 2Mc(a^+ + b)] = N \left(\frac{\gamma \hbar}{2}\right)^2 \frac{1}{-2(2J_1 + J_2 + 4J_3 + 3K_p \cdot 4 \langle S^2(T) \rangle^2)} \quad (11)$$

NMR の振動数  $\Omega(T)$  の温度依存性は次式よりあめられる。

$$(\Omega(T)/\Omega(0))^2 = (\langle S^2(T) \rangle / \langle S^2(0) \rangle)^2 (\chi_L(0) / \chi_L(T)) \quad (12)$$

ここで我々の用いようとする 3 種類の近似法について話をします。行列要素の  $M, a, b$  と  $c$  の表式にあいて、以下の取扱いをするのである。

(I)  $\langle S^2(T) \rangle = \frac{1}{2}$ ,  $\langle S_x^+ S_y^- \rangle = 0$  とするものはスピンの理論と同じ結果を出す。

(II)  $\langle S_x^+ S_y^- \rangle = 0$  とし、 $a$  と  $b$  の  $\langle S^2(T) \rangle$ ,  $\langle S^2(T) \rangle^3$  を保持するのは RPA である。

(III)  $\langle S^2(T) \rangle$  と  $\langle S_x^+ S_y^- \rangle(T)$  を  $k$  のまゝ保持するのは 2 格子系論のスピンの相関を取り入れた近似である。

特に(I)においてはスピンの縮みを  $\Delta S^2 = \frac{1}{2} - \langle S^2 \rangle$  とすると(10)は self-consistent に解かす、 $k$  の左辺を  $1 + 2\Delta S^2$  と置き右辺は  $\langle S^2 \rangle = \frac{1}{2}$  としてスピンの縮みを求める。

#### § 4 自由エネルギーの表式と $T_N$ の決定

ヘルムホルツの自由エネルギー

$$F_{\text{UDD}}/N = (E(T) - TS)/N \quad (13)$$

と常磁性のエネルギー

$$F_{\text{para}}/N = -k_B T \ln 2 \quad (14)$$

と等しいと置いて、 $T_N$  を求める。こゝで内部エネルギー  $E(T)$  を  $E_0(T) = \langle H \rangle$  とスピンの波の要素の中でのエネルギー  $E_{\text{SW}}(T)$  の和として分ける。

$$E_0(T)/N = -2(J_2 - 2J_3) \langle S^2(T) \rangle^2 + 8(3K_p + K_F) \langle S^2(T) \rangle^4 \quad (15)$$

$E_{\text{SW}}(T)$  は  $N$  状態密度関数  $\rho(\omega) = -\frac{2}{\pi} \text{Im} G(k, \omega)$  を用いて、次の様に分けられる。

$$E_{\text{SW}}(T) = \sum_k \int \frac{d\omega}{2\pi} \frac{2\omega}{e^{\beta\omega} - 1} [-\text{Im} \sum_{x=A,B,C,D} G \times A(k, \omega)] \\ = \sum_k 2 \langle S^2(T) \rangle \left\{ (\Delta_+ \coth \frac{\beta \Delta_+}{2} + \Delta_- \coth \frac{\beta \Delta_-}{2}) - 2M \right\} \quad (16)$$

一方、イントロダクションは内部エネルギーより次の通りである。

$$S = \int_0^T \frac{1}{T'} \frac{dE(T')}{dT'} dT' \quad (17)$$

分子場の自由エネルギーは  $\langle S^2(T) \rangle = \frac{1}{2}$  とおき、 $\chi$  のより  $S = 0$   $F = E_0(0)$  が導かれ  $T_N^{\text{mol}} = 1.2 \text{ mK}$  が我々の  $J$  と  $K_p$  の 2 行の  $x$ - $y$  組の値である。

#### § 5 高磁場相 HFP と $\text{Hc}(0)$

高磁場相は  $bcc$  の  $AB$  の 2 つの副格子から成る pseudo ferro 磁場相と考えられている。各副格子でのスピンの偏極  $p_A$  と  $p_B$  ( $p = 2 \langle S^z \rangle$ ) は互に  $2 \cos^{-1} u = 2$  中の

の角度を $\theta$ としている。こゝには $z$ 軸方向の磁場 $\times \mu_A \times \mu_B$ が $\theta$ の角度である。 $K$ の自由エネルギーの $T=0$ での値は、 $K = K_p + K_F$ とし磁場を $H$ とするとき次式で与えられる。

$$E_{pft}/N = -\frac{1}{2} [(-4J_1 + 3J_2 + 6J_3) + 3Kp^4 + 24Kp^4u + 8(J_1 - 3Kp^2)p^2u^2 - \frac{rH}{2}Hp u] \quad (18)$$

一方 UDD 相の $T=0$ でのエネルギーの値は、 $\S 4$ の $E$ を用いて次式で与えられる。

$$E_{UDD}/N = E(0)/N - \frac{1}{2} \chi_{\perp}(0) H^2 \quad (19)$$

この両式を等しいと置いて  $H_c(0)$  が求められる。これは  $E_{pft}$  を極小とすることによって決める。

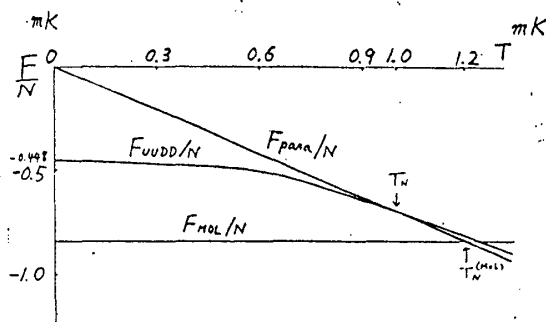
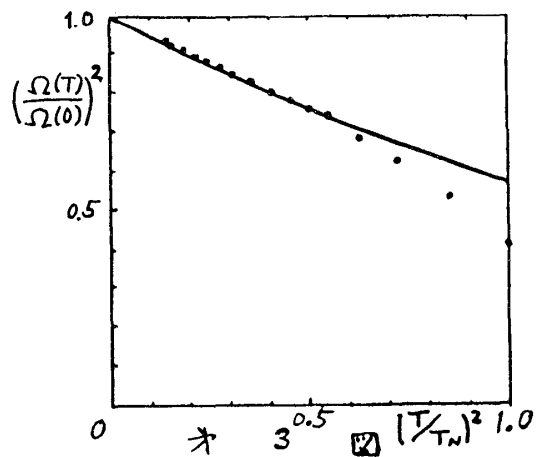
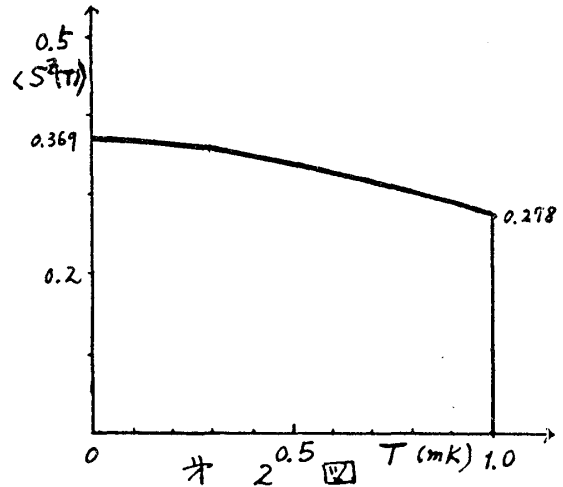
飽和磁化  $M$  は  $(\frac{2\mu}{g}) N u = M_0 u$  として求める。

### § 6 計算の結果

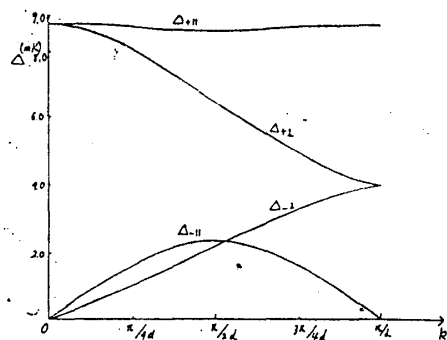
§ 3 に述べた近似の種類に従って述べて行く。

(I) スピン波理論は得られたすべての式において、 $\langle S^2(T) \rangle$  の self consistent 方程式の左辺を $\langle S^2(T) \rangle$  を  $1/2$  と置いて置く近似で、これより求めたのがオ 2 図の  $\langle S^2(T) \rangle$  の温度変化であり、 $T_N$  はオ 4 図の自由エネルギーの UDD と常磁性の値の等しくなった温度より求めた。帯磁率  $\chi_{\perp}(T)$  は温度変化せず、 $\chi_{\perp} = 0.197 (\frac{2\mu}{g})^2 N$  で  $T_N$  での値は  $\chi_{\perp}(T_N) / \chi_{\perp}(T_N) = 0.59$  (Shiga の実験は 0.43) である。NMR の振動数の 2 乗比  $[\Omega(T)/\Omega(0)]^2$ 、自由エネルギー  $F/N$  とスピン波励起エネルギーはそれぞれオ 3、4 と 5 図に示した。 $\Omega(T)$  は  $T_N$  付近以外は黒丸で示した実験値とよく合う。自由エネルギーは常磁性状態への移行する点として求めた  $T_N$  は分子場のため  $F_{MOL}/N$  と常磁性状態との交点より下がり、実験値 1.0 mK をほぼ与える。

pseudo ferro 相についてと同様にスピン波理論を展開して、スピンの縮みをもとめから



オ 4 図



オ 5 図

$H_c(0)$  と  $M$  を計算すると,  $\langle S^2(0) \rangle = 0.383$  より  $H_c(0) = 4.0 \text{ KG}$  と  $M = 0.44$  ( $\frac{1}{2}$ )  $N$  とし  $Osheroff$  の実験の外挿値  $H_c(0) = 4.5 \text{ KG}$  と幾つかの  $G$  の  $\mu$  の実験値  $M = (0.40, 0.50 \text{ また } 0.70) (\frac{1}{2}) N$  にまあまあよく合っている。

図5の  $\Delta_{\parallel}$  と  $\Delta_{\perp}$  はそれぞれ  $z$  軸方向に平行又は垂直の方向のスピン波励起エネルギー, それらの方向のスピン波速度 (acoustic) の平均は  $C = (C_{\parallel} C_{\perp})^{1/2} = 6.54 \text{ cm/s}$  であるが, 実験値の  $8.4 \text{ cm/s}$  に較べると小さい値である。

(II) RPA 近似は行列要素の 2 格子点のスピン相関関数をすべて零と置き, オートノーマライズ  $\langle S^2(T) \rangle$  をすべて保持するものである。このようにして  $\langle S^2(T) \rangle$  の従う

方程式 (10) を self consistent に解いた結果が図6で, 特徴的なのは  $T = 0.625 \text{ mK}$  で解が急に無くなること, この  $T$  を  $T_N$  として画いた  $\langle S^2(T) \rangle$  の温度依存性である。これを用いて図7に  $\chi_L(T)$  の温度依存性を示した。但し  $\chi_L(T_N)/\chi_L(T_N)$  は  $0.79$  である。  $[\Omega(T)/\Omega(0)]^2$  の振舞いは図8に示した。黒丸は実験の点である。スピン波励起は図5と類似で, スピン波の速度の平均は  $7.74 \text{ cm/s}$  と改善された。

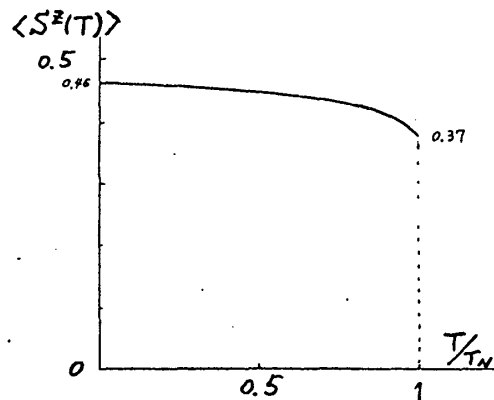


図 6

$$\frac{\chi_L(T)}{\chi_L(T_N)}$$

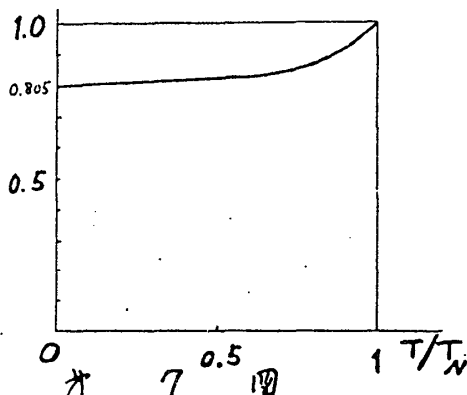


図 7

$$[\Omega(T)/\Omega(0)]^2$$

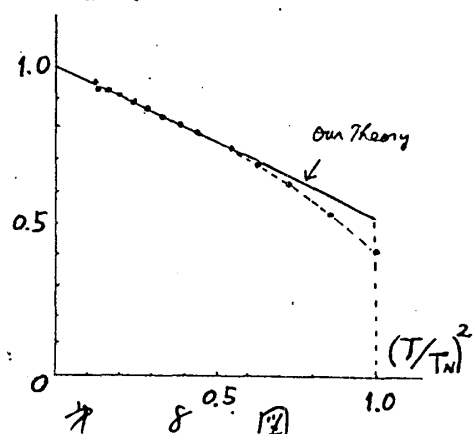


図 8

(III) 更に RPA の近似で求めた  $\langle S^2(T) \rangle$  の値と,  $0.625 \text{ mK}$  以上ではこれを外挿した値を用いて 2 格子点の 2 スピン相関関数  $\langle S_x^+ S_y^- \rangle$  を計算して,  $\langle S^2(T) \rangle$  の self-consistent な方程式の行列要素に出て来る 2 スピン相関関数を入れて  $\langle S^2(T) \rangle$  を求めたのが図9である。  $T_N$  としたのは図12で自由エネルギー  $F/N$  を求める時,  $0.6 \text{ mK}$  よりも上の  $0.8 \text{ mK}$  の零点のゆがみのエネルギーが正になりまた分子場エネルギーより下がり,  $\langle S^2(T) \rangle$  の大なり自身  $0.8 \text{ mK}$  で飽く0になるのを,  $0.6 \text{ mK}$  を選んだ。  $\langle S^2(T) \rangle$  を用いて図10に  $\chi_L(T)$  を求め, 図11に  $[\Omega(T)/\Omega(0)]^2$  を示した。黒丸は実験の点である。更にこれをもう一歩進めてこの  $\langle S^2(T) \rangle$  を用いて  $\langle S_x^+ S_y^- \rangle$  を計算して,  $\langle S^2(T) \rangle$  を self consistent に求めると,  $T=0$  以外に解がないと云う状況である。こ

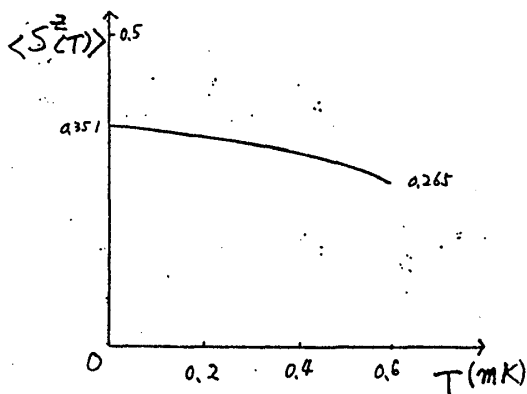


図 9

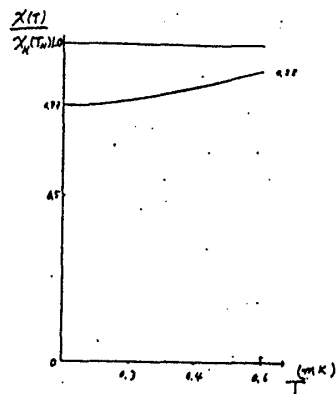


図 10

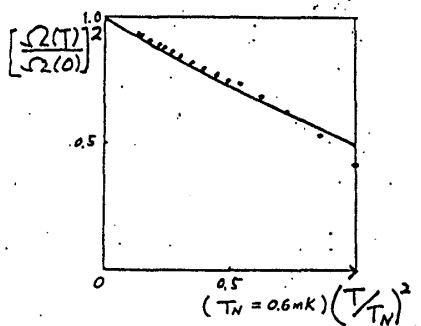


図 11

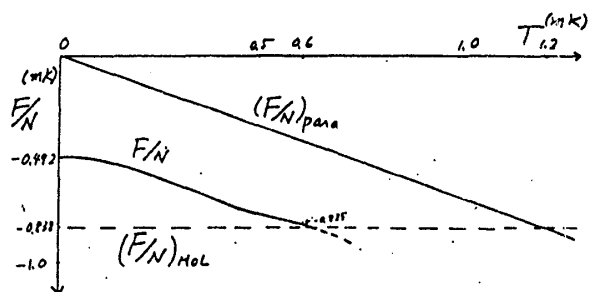


図 12

の結果はまだ preliminary である。H<sub>2</sub>O の場合は pseudo ferro 相の (II) と (III) に相当する計算がまだ行われていないので、改善されている。

### 3.7 Discussion

スピントリニ理論で大体良い結果を与えている。decoupling を通めると、 $\langle S^2(T) \rangle$  が全よりずれてくる為か観測と違ふ無く、0.6 mK 以上で解がなくなるのは計算のやり方が悪いのか又は helical とか normal anti ferro とか simple cubic anti ferro の状態に VVD より移行している為か又知れず、自由エネルギーを計算して今後検討する。この必要は芳田先生の論文にもあるが、筑波大の新井秀昭先生の計算機のプログラミングの作成と計算と、pseudo ferro 相の理論計算は同大学院の兒島伸生先生の協力とで出来上がったものである。

### REFERENCE

- 1) W. P. Halperin et al, J. Low Temp. Phys. 31 (1978) 617.
- 2) T. C. Prewitt and J. M. Goodkind, Phys. Rev. Lett. 60A (1977) 156.
- 3) E. D. Adams et al, Phys. Lett. 64A (1977) 208.
- 4) D. D. Osheroff, M. C. Gross and D. S. Fisher, Phys. Rev. Lett. 44 (1980) 792.
- 5) M. Roger, J. M. Delrieu and J. H. Dethierington, Rev. Mod. Phys. 55 (1983) 1.
- 6) T. Soda, T. Ara i and K. Yosida, Proc. of ICM, Kyoto (1982).